

**PRODUCTION OF MAGNESIA POWDER RESISTANT TO HYDRATION**

**Patent number:** JP63045117  
**Publication date:** 1988-02-26  
**Inventor:** MORITA MITSUHIKO others: 02  
**Applicant:** UBE IND LTD  
**Classification:**  
- **international:** C01F5/02; C08K9/06; C09C1/02; H01L23/30  
- **european:**  
**Application number:** JP19860185158 19860808  
**Priority number(s):**

**Report a data error here**

**Abstract of JP63045117**

**PURPOSE:** To produce magnesia powder having excellent hydration resistance, by separating magnesia powder dispersed in an alkoxysilane solution and heat-treating the separated magnesia powder after drying.

**CONSTITUTION:** Magnesia powder having an average particle diameter of 0.01-1µm is produced by the vapor-phase oxidation of hot vapor of magnesium metal or magnesia powder having an average particle diameter of 1-30µm is produced by circulating the above magnesia powder in an oxidizing flame to effect the melting and growth of the particles. The produced powder is dispersed in an organic solvent (e.g. ethanol) solution of an alkoxysilane (e.g. tetraethoxysilane) having a concentration of  $\geq 1\text{vol}\%$  effect the adsorption of the alkoxysilane molecule on the surface of the magnesia powder and the powder is separated from the liquid. The magnesia powder is dried by heating at 50-300 deg.C and heat-treated at 300-600 deg.C to decompose the alkoxysilane adsorbed to the surface.

Data supplied from the esp@cenet database - Patent Abstracts of Japan

## ⑫ 公開特許公報(A)

昭63-45117

⑬ Int.Cl.<sup>4</sup>

識別記号

庁内整理番号

⑭ 公開 昭和63年(1988)2月26日

C 01 F 5/02  
C 08 K 9/06CAH  
KCQ  
PAC

7508-4G

A-6845-4J  
7102-4JC 09 C 1/02  
H 01 L 23/30

R-6835-5F

審査請求 未請求 発明の数 1 (全4頁)

⑮ 発明の名称 耐水和性マグネシア粉末の製造方法

⑯ 特 願 昭61-185158

⑰ 出 願 昭61(1986)8月8日

⑱ 発 明 者 森 田 光 彦 山口県宇部市西本町1丁目12番32号 宇部興産株式会社宇部本社内  
 ⑲ 発 明 者 山 本 哲 男 山口県宇部市西本町1丁目12番32号 宇部興産株式会社宇部本社内  
 ⑳ 発 明 者 林 山 修 二 山口県宇部市西本町1丁目12番32号 宇部興産株式会社宇部本社内  
 ㉑ 出 願 人 宇部興産株式会社 山口県宇部市西本町1丁目12番32号

## 明 細 書

## 1. 発明の名称

耐水和性マグネシア粉末の製造方法

## 2. 特許請求の範囲

(1) マグネシア粉末をアルコキシシラン液中に分散した後、液から分離し、50～300℃にて乾燥し、300～600℃にて熱処理することによってマグネシア粉末の粒子表面にシリカの被膜を形成させることを特徴とする耐水和性マグネシア粉末の製造方法。

(2) アルコールで希釈されたアルコキシシランを使用する特許請求の範囲第(1)項記載の耐水和性マグネシア粉末の製造方法。

(3) マグネシア粉末が金属マグネシウムの加熱蒸気を気相酸化して得られた平均粒径が0.01～1μmのマグネシア粉末である特許請求の範囲第(1)項記載の耐水和性マグネシア粉末の製造方法。

(4) マグネシア粉末が金属マグネシウムの加熱蒸気を気相酸化して得たマグネシア微粒子を酸化

炎中に循環することにより溶融成長させて製造した平均粒径が1～30μmのマグネシア粉末である特許請求の範囲第(1)項記載の耐水和性マグネシア粉末の製造方法。

## 3. 発明の詳細な説明

(産業上の利用分野)

本発明は耐水和性に優れたマグネシア粉末の製造方法に関するものである。

(従来の技術)

マグネシアは熱伝導率が高く、電気絶縁性に優れた物質であるので、例えば近年の電子部品の高集積化に伴って発熱量が増大した電子部品の熱放散性を改善するために、従来の封止材料用充填剤として主に用いられているシリカ粉末に代えて、より熱伝導率の高いマグネシア粉末を使用しようとする試みがなされてきた。

しかしながらマグネシアは耐水和性に劣り、空気中の水分によっても容易に水和されて水酸化マグネシウムとなり、熱伝導率や電気絶縁性が著しく劣化する。そのため、上述のような充填剤とし

てマグネシア粉末を使用する場合には、種々のカップリング剤を用いたカップリング処理や、オキシカルボン酸塩を吸着させるなどにより、耐水性和性の向上が計られてきた。

(発明が解決しようとする問題点)

しかしながらいずれの方法によっても、十分に耐水性和性の高いマグネシア粉末は得られず、マグネシア粉末を充填剤等として使用するに至っていない。

さらに、水酸化マグネシウムや塩基性炭酸マグネシウムなどの種々のマグネシウム化合物の熱分解によって得られるマグネシア粉末は凝集性が強いので、樹脂と混練した場合に分散性が充分でないという欠点も見られた。

本発明は、上記困難を克服するため、耐水性和性が高くかつ分散性も優れた耐水性和性マグネシア粉末の製造方法を提供することを目的とする。

(問題点を解決するための手段)

本発明は、マグネシア粉末をアルコキシシラン液中に分散した後、液から分離し、50～300

℃にて乾燥し、300～600℃にて熱処理することによってマグネシア粉末の粒子表面にシリカの被膜を形成させることを特徴とする耐水性和性マグネシア粉末の製造方法に関する。

本発明の製造方法に使用するマグネシア粉末は、

(1) 金属マグネシウムの加熱蒸気を気相酸化して得られた平均粒径が0.01～1μmのマグネシア粉末、

(2) 金属マグネシウムの加熱蒸気を気相酸化して得たマグネシア微粒子を酸化炎中に循環することにより溶融成長させて製造した平均粒径1～30μmのマグネシア粉末、

(3) マグネシウム化合物の熱分解によって得られたマグネシア粉末

など適宜使用し得るが、(1)および(2)が好適である。(3)は一般的に粒子の凝集性が強いので、本発明方法をそのまま適用すると、乾燥工程において凝集体粒子間に存在する過剰のアルコキシシランを完全には除去できず、その後の熱処理工程において凝集体粒子間でシリカが生成するためよ

り強固な凝集体となり易いなどの困難が生ずるので、ある程度の配慮をする必要がある。

上記(1)あるいは(2)のマグネシア粉末は凝集性が小さく、本発明方法を適用して製造した耐水性和性マグネシア粉末においても優れた非凝集性が保持される。さらに、精製が容易な金属マグネシウムを原料としているため、UおよびThの含有量を1ppb以下におさえることができる。又、アルコキシシランも容易に蒸溜の可能な化合物であるため、UおよびThの含有量を0.05ppb以下まで低下することが可能である。このため、これらを原料にして製造した耐水性和性マグネシア粉末に含まれるUおよびThの含有量も1ppb以下と極めて低く、半導体封止材料用充填剤として使用しても、UおよびThからの放射線による誤動作を防止できる。

本発明の方法は、まずマグネシア粉末をアルコキシシラン液中に分散させ、粒子表面にアルコキシシラン分子を吸着させる。アルコキシシランとしてはテトラエトキシシラン、テトラメトキシシ

ラン、メチルトリエトキシシランなど種々の物質が使用できるが、テトラエトキシシランが好適である。

粒子表面に吸着させるアルコキシシランの量は、アルコキシシランをアルコールで希釈することによって任意に制御できる。この場合、アルコールとしてはエタノール、メタノール、プロパノール等種々のアルコールが使用できるが、本発明においてはエタノールが好ましい。なお、アルコキシシラン溶液の濃度が1容量%より低いと、十分な量のアルコキシシランが吸着せず不適當であった。

アルコキシシラン液中で混合したマグネシア粉末を濾過により液から分離後、50℃～300℃で乾燥し、粒子間に付着している過剰のアルコキシシランを除去する。最適な乾燥温度はアルコキシシランの種類によって異なるが、50℃より低い温度では過剰のアルコキシシランを除去できず、また300℃より高い温度では過剰のアルコキシシランが気相や粒子間で分解し、粉末状のシリカの混入や不均一なシリカ被膜の形成あるいは粒子

間の凝集が起こる原因となり不適当である。

乾燥によって得られた塊状のマグネシア粉末を軽く粉碎した後、300℃～600℃で熱処理することにより、表面に吸着したアルコキシシランを分解させると緻密なシリカ被膜が形成する。この際300℃より低い温度ではアルコキシシランの分解が不完全で緻密な被膜は得られない。また600℃より高い温度で熱処理を行なっても、耐水和性の著しい向上は見られず、経済面での不利の方が大きくなるのみである。

マグネシア粒子上に形成させたシリカ被膜は、従来のシランカップリング処理によって得られるシリカ被膜に比べて著しく緻密でほとんど水を透過することはない。この理由の一つは、シランカップリング処理の最終的な熱処理を300℃より低い温度で行なっているのに対し、本発明では300℃～600℃とより高温で行なっているため、シリカ被膜がより緻密になったものと推定される。

(実施例)

105℃で5時間乾燥した粉末についてJIS R5202による強熱減量の測定、理学電機製MINIFLEX D-3F型X線回折計による同定を行なった。その結果を第1表に示す。尚、BET比表面積は7.8 ml/gである。

#### 実施例2

金属マグネシウムの加熱蒸気を気相酸化させて得られるマグネシア微粒子を高温3800℃の酸化炎中へ循環することにより溶融成長させて製造したUおよびThの含有量が0.6ppbで平均粒径が20.1μm粒状マグネシア粉末を用いて実施例1と同様にして耐水和性マグネシア粉末を製造した。

マグネシア粒子上に被膜を形成したシリカの量は1.8モル%であり、この量よりシリカ被膜の厚さを求めると0.2μmであった。この耐水和性マグネシア粉末を実施例1と同様にして水和試験を実施した。その結果を第1表に示す。

尚、用いたテトラエトキシシランに含まれるUおよびThの含有量は合計で0.05ppb以下と

次に実施例により本発明をさらに具体的に説明するが、本発明はこれら実施例に限定されない。

#### 実施例1

BET比表面積から換算した平均粒径が0.2μmのマグネシア粉末1000gをテトラエトキシシラン500ml、エタノール1000mlの割合で混合した溶液中に分散させ室温で1時間攪拌した。そのスラリーを濾過し、さらに空気雰囲気、105℃で5時間乾燥した後、ボールミルで15分間粉碎し500℃で1時間熱処理してシリカ被膜を形成させた。このようにして得られたマグネシア粉末を透過型電子顕微鏡により観察したところ、粒子の凝集、成長はほとんど見られず非常に分散性の優れた粉末であった。

尚、得られた粉末のシリカ量 $\text{SiO}_2 / (\text{MgO} + \text{SiO}_2)$ のモル比は8.5モル%であった。

次に、このシリカ被膜を有するマグネシアの水和試験を下記方法により実施した。

上記粉末5gを200ccの蒸留水中に分散させ、25℃5時間及び72時間攪拌後、濾過し、

極めて少ないため、製造された耐水和性マグネシア微粉末のUおよびThの合計含有量も0.6ppbであった。

#### 比較例1

熱処理温度が250℃である以外は実施例1と同様にして耐水和性マグネシア粉末を製造した。得られた粉末の水和試験を実施例1と同様の方法で行なった。結果を第1表に示す。

#### 比較例2～4

実施例1で用いた気相法のマグネシア粉末を3-アミノプロピルトリエトキシシラン(比較例2)、フェニルトリメトキシシラン(比較例3)、3-メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン(比較例4)の処理剤で公知の方法によりカップリング処理し、実施例1と同様に500℃で1時間熱処理した。各々の処理粉体について水和試験を実施例1と同様の方法で行なった。その結果を第1表に示す。

第1表 水和試験の結果

No.	25℃水和5時間			25℃水和72時間		
	強熱減量 (%)	X線回折 注)		強熱減量 (%)	X線回折 注)	
		MgO	Mg(OH) <sub>2</sub>		MgO	Mg(OH) <sub>2</sub>
実施例1	0.1	◎	×	0.1	◎	×
2	0.01	◎	×	0.01	◎	×
比較例1	1.8	○	○	1.9	○	○
2	26.3	×	◎	29.0	×	◎
3	5.1	△	◎	15.7	△	◎
4	4.2	△	◎	15.0	△	◎

注) X線回折の結果において、◎&gt;○&gt;△の順に

含有量が多いことを示し、×は検出されなかったことを示す。

## (発明の効果)

本発明は、耐水和性と樹脂に混練した場合の分散性に優れ、かつ各種充填剤や添加剤としての使用に適する耐水和性マグネシア粉末の簡便な製造方法を提供している。高純度の耐水和性マグネシア粉末が容易に得られ、UおよびThの含有量も1ppb以下に低下させることが可能なため、この粉末を半導体封止材料用充填剤として使用しても、放射線によって記憶素子に誤動作を生じさせることはない。

特許出願人

宇部興産株式会社